

## 日 本 国 特 許 庁

JAPAN PATENT OFFICE

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office

出 願 年 月 日

Date of Application:

2002年 9月30日

出 願 番 号

Application Number:

特願2002-288069

[ ST.10/C ]:

[ JP2002-288069 ]

出 願 人

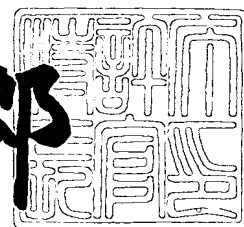
Applicant(s):

株式会社東芝

2003年 3月 7日

特 許 庁 長 官  
Commissioner,  
Japan Patent Office

太田信一郎



出証番号 出証特2003-3014099

【書類名】 特許願

【整理番号】 13B027072

【提出日】 平成14年 9月30日

【あて先】 特許庁長官 殿

【国際特許分類】 H01M 8/04

【発明の名称】 燃料電池システム

【請求項の数】 8

【発明者】

【住所又は居所】 神奈川県川崎市幸区小向東芝町1番地 株式会社東芝  
研究開発センター内

【氏名】 佐藤 裕輔

【特許出願人】

【識別番号】 000003078

【氏名又は名称】 株式会社 東芝

【代理人】

【識別番号】 100083806

【弁理士】

【氏名又は名称】 三好 秀和

【電話番号】 03-3504-3075

【選任した代理人】

【識別番号】 100068342

【弁理士】

【氏名又は名称】 三好 保男

【選任した代理人】

【識別番号】 100100712

【弁理士】

【氏名又は名称】 岩▲崎▼ 幸邦

【選任した代理人】

【識別番号】 100100929

【弁理士】

【氏名又は名称】 川又 澄雄

【選任した代理人】

【識別番号】 100108707

【弁理士】

【氏名又は名称】 中村 友之

【選任した代理人】

【識別番号】 100095500

【弁理士】

【氏名又は名称】 伊藤 正和

【選任した代理人】

【識別番号】 100101247

【弁理士】

【氏名又は名称】 高橋 俊一

【選任した代理人】

【識別番号】 100098327

【弁理士】

【氏名又は名称】 高松 俊雄

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 001982

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 図面 1

【物件名】 要約書 1

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 燃料電池システム

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 燃料を水素リッチガスに改質する改質器と、前記改質器から供給される水素リッチガスと酸素供給手段から供給される酸素とによって発電を行う燃料電池本体とを備えてなる燃料電池システムにおいて、前記燃料は飽和蒸気圧が大気圧より高圧となる燃料であって密閉容器内に収容してあり、この密閉容器内の飽和蒸気圧により前記燃料を前記改質器へ送給する構成であることを特徴とする燃料電池システム。

【請求項 2】 請求項 1 に記載の燃料電池システムにおいて、前記燃料は、ジメチルエーテルと水との混合液であることを特徴とする燃料電池システム。

【請求項 3】 燃料を水素リッチガスに改質する改質器と、前記改質器から供給される水素リッチガスと酸素供給手段から供給される酸素とによって発電を行う燃料電池本体とを備えてなる燃料電池システムにおいて、前記燃料は密閉容器内に収容してあり、この密閉容器内へ供給された加圧ガスの圧力により前記燃料を前記改質器へ送給する構成であることを特徴とする燃料電池システム。

【請求項 4】 請求項 3 に記載の燃料電池システムにおいて、前記燃料はメタノールと水との混合液であることを特徴とする燃料電池システム。

【請求項 5】 請求項 3 に記載の燃料電池システムにおいて、前記燃料はエタノールと水との混合液であることを特徴とする燃料電池システム。

【請求項 6】 請求項 1, 2, 3, 4 又は 5 に記載の燃料電池システムにおいて、前記改質器においての改質反応は大気圧より高圧において行われる構成であることを特徴とする燃料電池システム。

【請求項 7】 請求項 1 ～ 6 のいずれかに記載の燃料電池システムにおいて、前記改質器と前記燃料電池本体との間に、前記改質器から供給される水素リッチガス中の水素を選択的に透過する半透膜手段を備えたことを特徴とする燃料電池システム。

【請求項 8】 請求項 1 ～ 6 のいずれかに記載の燃料電池システムにおいて、前記改質器と前記燃料電池本体との間に、前記改質器から供給される水素リッ

チガス中の一酸化炭素を除去するCO除去手段を備えたことを特徴とする燃料電池システム。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は、燃料を水素リッチガスに改質するための改質器と、この改質器から供給される水素リッチガスと酸素供給手段から供給される酸素により発電を行う燃料電池本体とを備えてなる燃料電池システムに関する。

【0002】

【従来の技術】

燃料電池には、使用する電解質の種類により、固体高分子型、リン酸型、アルカリ型、熔融炭酸塩型、固体酸化物型等の型式があるが、前記燃料電池へ供給する水素は、例えば天然ガス、プロパンガス、メタノール等の種々の燃料を改質器において水素リッチガスに改質することによって供給されているのが一般的である。そして、酸素は、空気中の酸素がそのまま使用されており、コンプレッサーによって空気を燃料電池に供給している。

【0003】

すなわち、燃料電池システムにおいては、燃料電池本体の他に、燃料電池本体に空気を送給するためのコンプレッサや、燃料を水素リッチガスに改質するための改質器及びこの改質器に対して燃料を送給するためのポンプ等が必要である〔例えば、特許文献1参照〕。

【0004】

【特許文献1】

特開2001-226102号公報

【0005】

【発明が解決しようとする課題】

前述のごとき従来の構成においては、改質器に対して燃料を供給するためのポンプが必要であると共に、前記燃料を水素リッチガスに改質するための改質器の容積が大きく、燃料電池システムの全体的構成の簡素化、小型化を図る上におい

てさらなる改良が求められている。

【 0 0 0 6 】

【課題を解決するための手段】

本発明は、前述のごとき従来の問題に鑑みてなされたもので、請求項 1 に係る発明は、燃料を水素リッチガスに改質する改質器と、前記改質器から供給される水素リッチガスと酸素供給手段から供給される酸素とによって発電を行う燃料電池本体とを備えてなる燃料電池システムにおいて、前記燃料は飽和蒸気圧が大気圧より高圧となる燃料であって密閉容器内に収容してあり、この密閉容器内の飽和蒸気圧により前記燃料を前記改質器へ送給する構成である。

【 0 0 0 7 】

請求項 2 に係る発明は、請求項 1 に記載の燃料電池システムにおいて、前記燃料は、ジメチルエーテルと水との混合液である。

【 0 0 0 8 】

請求項 3 に係る発明は、燃料を水素リッチガスに改質する改質器と、前記改質器から供給される水素リッチガスと酸素供給手段から供給される酸素とによって発電を行う燃料電池本体とを備えてなる燃料電池システムにおいて、前記燃料は密閉容器内に収容してあり、この密閉容器内へ供給された加圧ガスの圧力により前記燃料を前記改質器へ送給する構成である。

【 0 0 0 9 】

請求項 4 に係る発明は、請求項 3 に記載の燃料電池システムにおいて、前記燃料はメタノールと水との混合液である。

【 0 0 1 0 】

請求項 5 に係る発明は、請求項 3 に記載の燃料電池システムにおいて、前記燃料はエタノールと水との混合液である。

【 0 0 1 1 】

請求項 6 にかかる発明は、請求項 1，2，3，4 又は 5 に記載の燃料電池システムにおいて、前記改質器においての改質反応は大気圧より高圧において行われる構成である。

【 0 0 1 2 】

請求項 7 に係る発明は、請求項 1 ～ 6 のいずれかに記載の燃料電池システムにおいて、前記改質器と前記燃料電池本体との間に、前記改質器から供給される水素リッチガス中の水素を選択的に透過する半透膜手段を備えた構成である。

【 0 0 1 3 】

請求項 8 に係る発明は、請求項 1 ～ 6 のいずれかに記載の燃料電池システムにおいて、前記改質器と前記燃料電池本体との間に、前記改質器から供給される水素リッチガス中の一酸化炭素を除去する CO 除去手段を備えた構成である。

【 0 0 1 4 】

【発明の実施の形態】

図 1 を参照するに、本発明の第 1 の実施形態に係る燃料電池システム 1 は、燃料電池の 1 例としてイオン導電性を有する固体高分子膜（イオン交換膜）3 を、燃料極 5 と空気極（酸化剤極）7 によって挟み込んだ構成の燃料電池本体 9 を備えている。この種の燃料電池は、固体高分子型燃料電池（高分子電解質形燃料電池）として知られているので、前記燃料電池本体 9 の詳細な説明は省略する。

【 0 0 1 5 】

前記燃料電池本体 9 における前記燃料極 5 に対して水素を供給するために、燃料を水素リッチガスに改質するための改質器 11 が設けられている。前記燃料は、飽和蒸気圧が大気圧より高圧であるジメチルエーテル（DME）と水とを 1 : 6 の割合で混合した混合液であって、密閉容器 13 内に収容してある。良く知られているようにジメチルエーテルの常温での飽和蒸気圧は大気圧より高圧であって約 6 気圧の圧力を有する。水との混合液の場合、蒸気圧は低下するが、前記混合液を密閉容器 13 内に収容して密閉した状態においては、密閉容器 13 内には約 4 気圧の飽和蒸気圧が常に作用していることになる。

【 0 0 1 6 】

前記密閉容器 13 内の前記混合液を取り出すために、前記密閉容器 13 の下部付近には開閉自在かつ開度調節を行うことによって前記混合液の流量を制御可能の開閉弁 15 が接続してあり、この開閉弁 15 には、前記改質器 11 に接続した気化器 17 が接続してある。したがって、前記開閉弁 15 を開くと、前記密閉容器 13 内に作用する飽和蒸気圧によって前記混合液は密閉容器 13 から流出され

る。そして、気化器 1 7 において気化し、気化したガスが前記改質器 1 1 へ供給されることになる。

#### 【 0 0 1 7 】

この際、前記密閉容器 1 3 内の気相に存在するガスを前記改質器 1 1 へ供給するものではなく、混合液を気化器 1 7 においてガス化してから前記改質器 1 1 へ供給するものであるから、前記改質器 1 1 に対してジメチルエーテルと水との割合の比に対応した一定の組成のガスを常に供給することができ、前記改質器 1 1 においては常に安定した良好な改質を行うことができるものである。

#### 【 0 0 1 8 】

既に理解されるように、密閉容器 1 3 内の燃料を改質器 1 1 に対して供給するに際しては、密閉容器 1 3 内の燃料の飽和蒸気圧を利用するものであるから、燃料を送給するためのポンプを省略することができ、全体的構成の簡素化を図ることができると共に小型化を図ることができるものである。

#### 【 0 0 1 9 】

前記改質器 1 1 内には  $\text{Al}_2\text{O}_3$  に  $\text{Rh}$  を担持した改質触媒が内装されており、この改質器 1 1 において、前記ジメチルエーテルと水との混合液は、 $[\text{CH}_3\text{OCH}_3 + 3\text{H}_2\text{O} \rightarrow 3\text{CO}_2 + 6\text{H}_2]$  と、水素を含む水素リッチガスに改質される。この改質されたガス中には、僅かではあるが  $\text{CO}$  が存在するので水素を選択的に透過する半透膜手段 1 9 が設けられている。

#### 【 0 0 2 0 】

上記半透膜手段 1 9 は、石英系の水素透過半透膜よりなるものであって、前記改質ガス中の主として水素を選択的に透過する作用をなすものであり、前記燃料電池本体 9 の燃料極 5 へほぼ水素のみのガスを供給するものである。前記半透膜手段 1 9 には、例えばニードルバルブのごとく開度を調節自在の背圧調節弁 2 1 が接続しており、この背圧調節弁 2 1 の上流側を、前記飽和蒸気圧より低圧であるが大気圧より高圧の例えば 3 気圧程度に調節してある。そして、前記背圧調節弁 2 1 の下流側はほぼ大気圧であって、触媒燃焼器 2 3 に接続してある。

#### 【 0 0 2 1 】

上記触媒燃焼器 2 3 内には通常の触媒燃焼器同様に  $\text{Pt}$  系の触媒が内装されて



おり、前記半透膜手段 1 9 を透過しなかったガス（DME， $H_2$ ，CO， $CO_2$ ， $H_2O$ ）が酸素供給手段の 1 例としてのブロア 2 5 から送給される空気と混合して前記触媒燃焼器 2 3 に供給され、触媒燃焼される。この触媒燃焼器 2 3 における触媒燃焼によって発生した熱は、前記気化器 1 7，改質器 1 1，半透膜手段 1 9 へ伝達されて、前記混合液の気化、改質反応熱、半透膜加熱に使用される。

#### 【0022】

既に理解されるように、前記半透膜手段 1 9 は背圧調節弁 2 1 によって大気圧よりも高圧の約 3 気圧が作用しているので、前記改質器 1 1 における改質は大気圧よりも高圧で行われることとなり、気化ガスの密度が大であるから、大気圧でもって改質反応を行う場合に比較して、改質器 1 1 の容積を小さくすることができる。また半透膜手段 1 9 における透過圧力差が大きいため水素透過半透膜の面積は大気圧で透過させる場合よりも小さくて良いこととなる。

#### 【0023】

したがって、改質器 1 1 及び半透膜手段 1 9 の構成の小型化を図ることが容易であり、全体的構成の小型化を図ることができるものである。

#### 【0024】

前記燃料電池本体 9 における前記空気極 7 へ空気を送給するために、酸素供給手段の 1 例としての前記ブロア 2 5 に接続した送給路 2 7 は加熱された空気を供給するために熱交換器 2 9 を経て前記触媒燃焼器 2 3 に接続した第 1 分岐路 2 7 A と前記空気極 7 側へ接続した第 2 分岐路 2 7 B とに分岐してあり、各分岐路 2 7 A，2 7 B にはニードルバルブ等のごとき開度調節自在の流量制御弁 3 1，3 3 がそれぞれ配置してある。

#### 【0025】

そして、前記燃料電池本体 9 における前記燃料極 5 へ送給された水素は発電に使用され、この燃料極 5 から排出される未使用の水素を前記触媒燃焼器 2 3 へ導くために、前記燃料極 5 側には回収路 3 5 が接続してある。上記触媒燃焼器 2 3 において燃焼された燃焼ガスは回路 2 4 を介して前記熱交換器 2 9 に導かれている。また、前記空気極 7 側から排出されるガスを回収するために、前記空気極 7 側には回収路 3 7 が接続してあり、この回収路 3 7 に回収された水蒸気の一部を

凝縮するために、前記回収路 3 7 は前記熱交換器 2 9 に接続してある。

【0026】

前記熱交換器 2 9 において凝縮されて回収された水は水タンク 3 9 に一時貯留され、前記燃料電池本体 9 における前記固体高分子膜 3 の保湿性を維持するために利用されている。前記回収路 3 7 に回収されたガス中の未使用の酸素と生成物としての水蒸気の一部を前記空気極 7 に循環するために、前記回収路 3 7 には前記第 2 分岐路 2 7 B 側へ接続した分岐路 3 7 A が分岐接続してあり、この分岐路 3 7 A には、流量制御弁 4 1 及びポンプ 4 3 が順次配置してある。

【0027】

上記構成により、空気極 7 から排出されるガスの一部はポンプ 4 3 によって吸引される態様となり、ガスを循環させることができる。また、前記燃料極 5 側からプロトンが移動する際に含水率が低下する傾向にある固体高分子膜 3 は、空気極 7 に対して生成物としての水蒸気の一部が循環されるので、保湿性が適正値に保持されることとなり、水分管理が容易になるものである。

【0028】

以上のごとき説明より理解されるように、改質器 1 1 に対する燃料の送給は、当該燃料の飽和蒸気圧を利用して行うものであるから、前記改質器 1 1 に対して燃料を送給するためのポンプを省略することができる。また前記改質器 1 1 の改質反応は、前記飽和蒸気圧に基づき、大気圧よりも高圧下において行うことができ、改質器 1 1 の容積を、大気圧で改質反応を行う場合に比較して小さくできることとなり、従来に比較して、燃料電池システムの全体的構成の簡素化、小型化を図ることができるものである。

【0029】

また、密閉容器 1 3 を加熱することにより、混合液の送液圧力をより高圧にすることが可能となる。さらに、密閉容器 1 3 より気体として DME と水を取り出すことも可能である。

【0030】

図 2 は本発明の第 2 の実施形態を示すもので、前記第 1 の実施形態において説明した構成部分と同一機能を奏する構成部分には同一符号を付することとして重

複した説明は省略する。

#### 【0031】

この第2の実施の形態においては、前記半透膜手段19に替えて、COを除去するためにCO除去手段45を備えた構成である。そして、前記開閉弁15と気化器17との間及び前記CO除去手段45と燃料極5との間にそれぞれ流量制御弁47, 49を配置した構成である。

#### 【0032】

前記CO除去手段45にはCu系の触媒を採用して、 $[\text{CO} + \text{H}_2 \rightarrow \text{CO}_2 + \text{H}_2]$ ,  $[\text{CO} + \text{H}_2 \rightarrow \text{CH}_4 + \text{H}_2\text{O}]$ の反応によりCOをCO<sub>2</sub>等に変化し、COの除去を行っているものである。上記反応を行う際、流量制御弁49の上流側は燃料の飽和蒸気圧より僅かに低圧であるが大気圧より高圧の約3気圧であって、COの除去がより効果的に行われる。

#### 【0033】

この第2の実施の形態においても前記第1の実施形態と同様の効果を奏し得るものである。

#### 【0034】

図3は本発明の第3実施形態を示すもので、前述した第1の実施形態と同一機能を奏する構成部分には同一符号を付することとして重複した説明は省略する。

#### 【0035】

この第3の実施の形態においては、燃料としてメタノールを使用し、前記密閉容器13にはメタノールと水との混合液を収容したものである。メタノールの飽和蒸気圧は常温では大気圧より低圧であるから、前記密閉容器13内の混合液を改質器11へ送給するために、窒素ガスを充填した加圧ポンプ51を、開閉弁53を介して前記密閉容器13に接続した構成である。

#### 【0036】

したがって、改質器11において改質反応を行うとき、大気圧よりも高圧において燃料の改質を行うことができ、前述した第1の実施形態と同様の効果を奏し得るものである。また第3の実施形態においても、半透膜手段19に替えてCO除去手段を採用する構成とすることも可能である。なお、燃料はメタノールでな

くエタノールでもよい。

【0037】

図4は、図2に示した気化器17，改質器11，CO除去手段45及び触媒燃焼器23を積層して改質器システムを構成する場合を例示したものである。この場合、単に順次積層するものではなく、各種反応等に伴う熱移動を考慮して吸熱反応層と発熱反応層とを隣接して積層することが望ましいものである。

【0038】

そこで、この図4に示す構成においては、断熱材よりなる断熱層55上に吸熱層である改質触媒層（改質器11）を積層し、この改質触媒層11上に発熱の大きな触媒燃料層（触媒燃焼器23）及びCOシフト層（CO除去手段45）を順次積層し、このCOシフト層の上部に吸熱層である気化層（気化器17）を積層した構成である。

【0039】

したがって発熱層においての発熱が吸熱層に効果的に利用されることとなり、熱効率がより向上するものである。

【0040】

【発明の効果】

以上のごとき説明より理解されるように、本発明によれば、燃料の飽和蒸気圧，加圧ガスの加圧力を利用して燃料を改質器に送給する構成であるから、燃料送給のためのポンプを省略することができると共に大気圧より高圧で改質反応を行うことが容易であり、燃料電池システムの全体的構成の簡素化を図ることができると共に小型化を図ることができるものである。

【図面の簡単な説明】

【図1】

本発明の第1の実施形態に係る燃料電池システムの構成を示す説明図である。

【図2】

本発明の第2の実施形態に係る燃料電池システムの構成を示す説明図である。

【図3】

本発明の第3の実施形態に係る燃料電池システムの構成を示す説明図である。

【図 4】

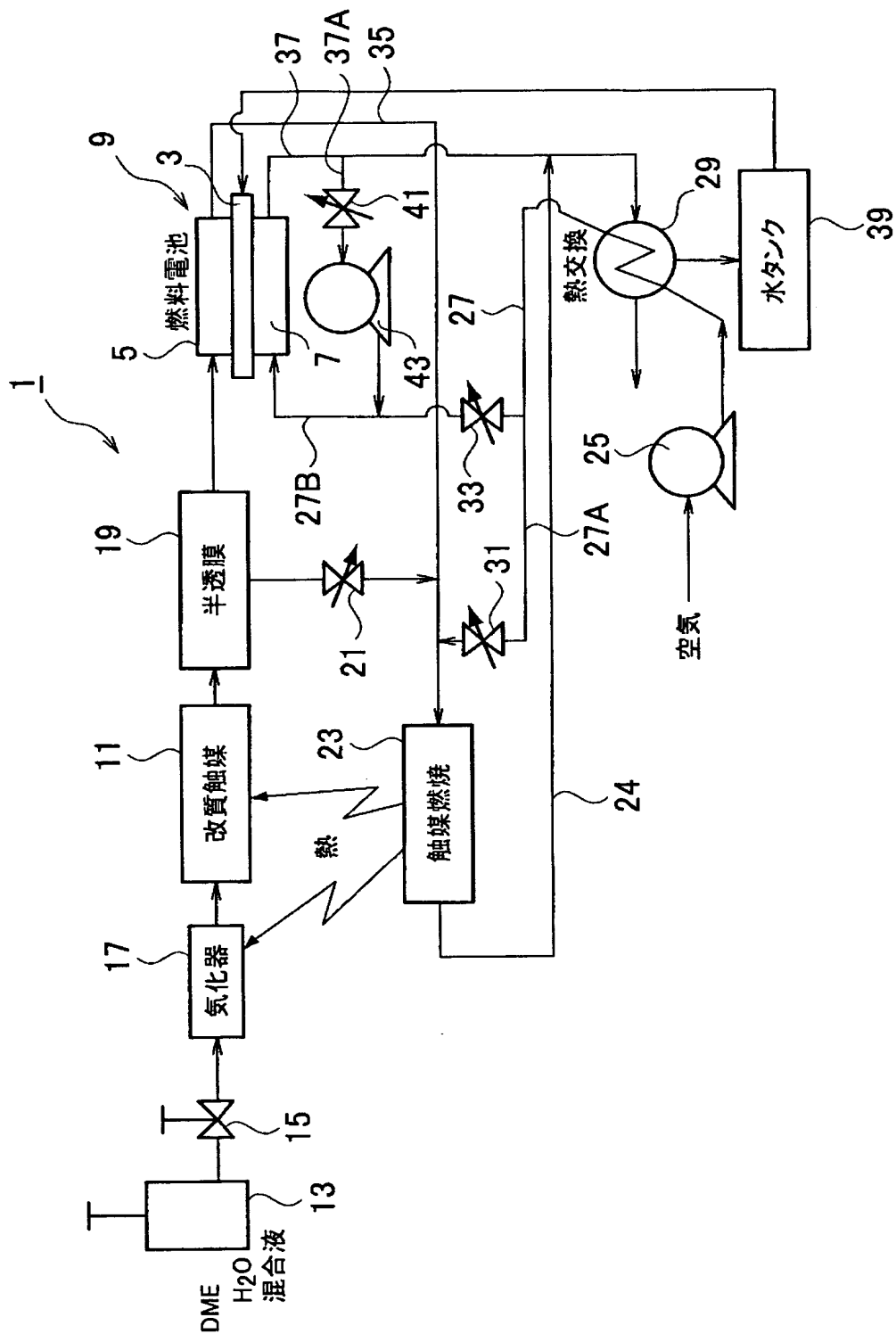
気化器，改質器，CO 除去手段及び触媒燃焼器を積層する場合の構成を示す説明図である。

【符号の説明】

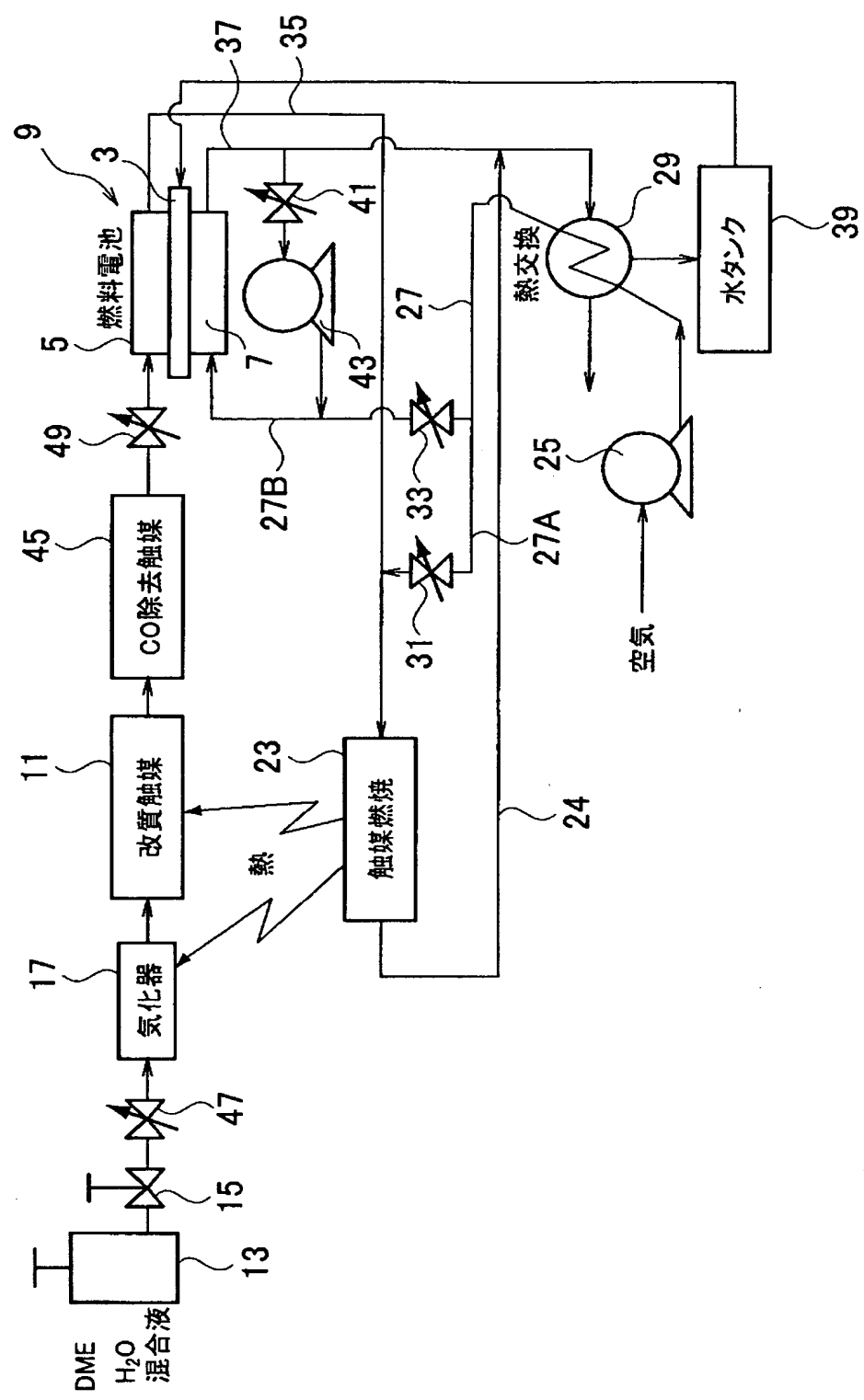
- 9 燃料電池本体
- 1 1 改質器
- 1 3 密閉容器
- 1 7 気化器
- 1 9 半透膜手段
- 2 1 背圧調節弁
- 2 3 触媒燃焼器
- 2 7 送給路
- 2 9 熱交換器
- 4 5 CO 除去手段
- 5 1 加圧ポンペ

【書類名】 図面

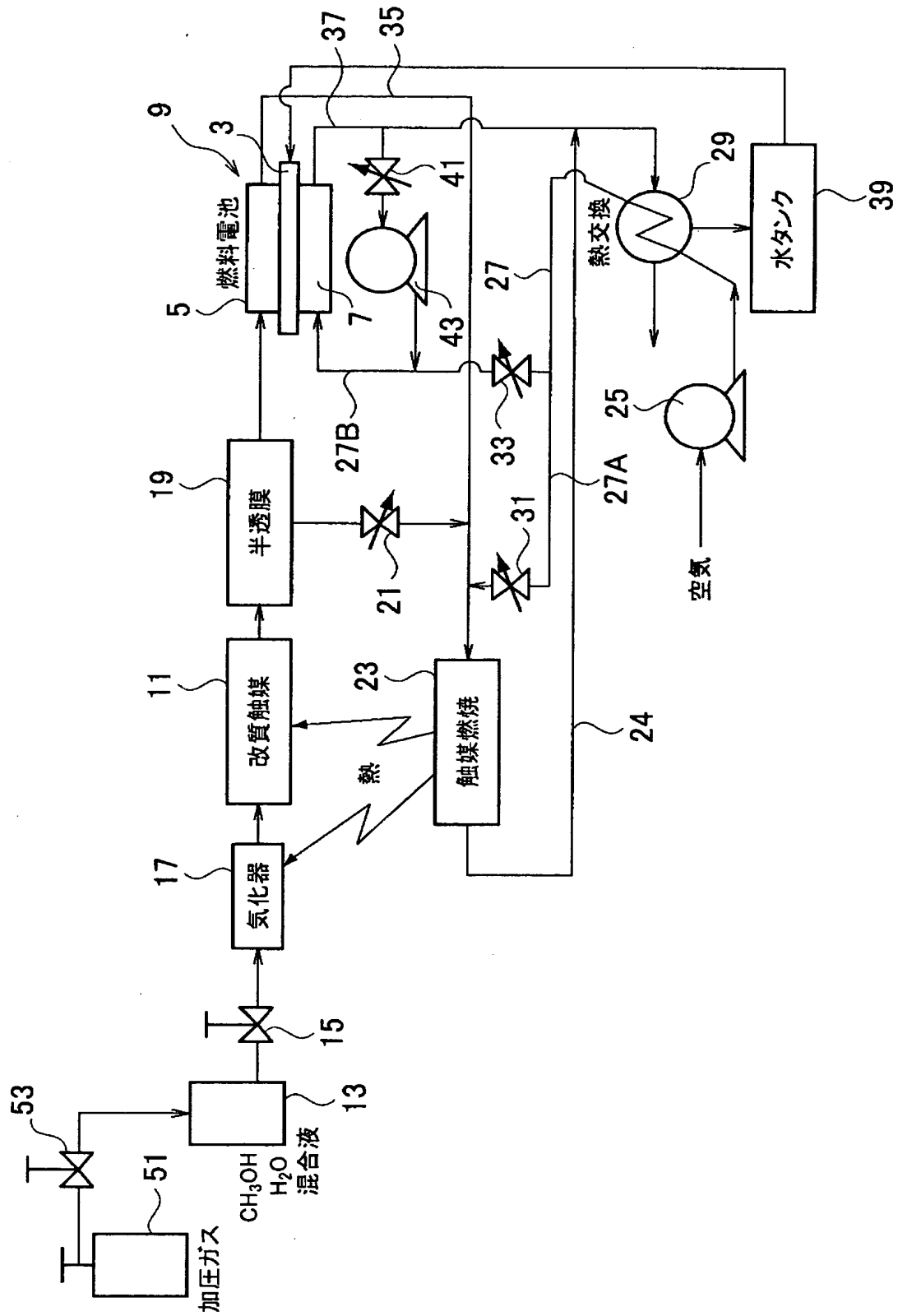
【図 1】



【図2】

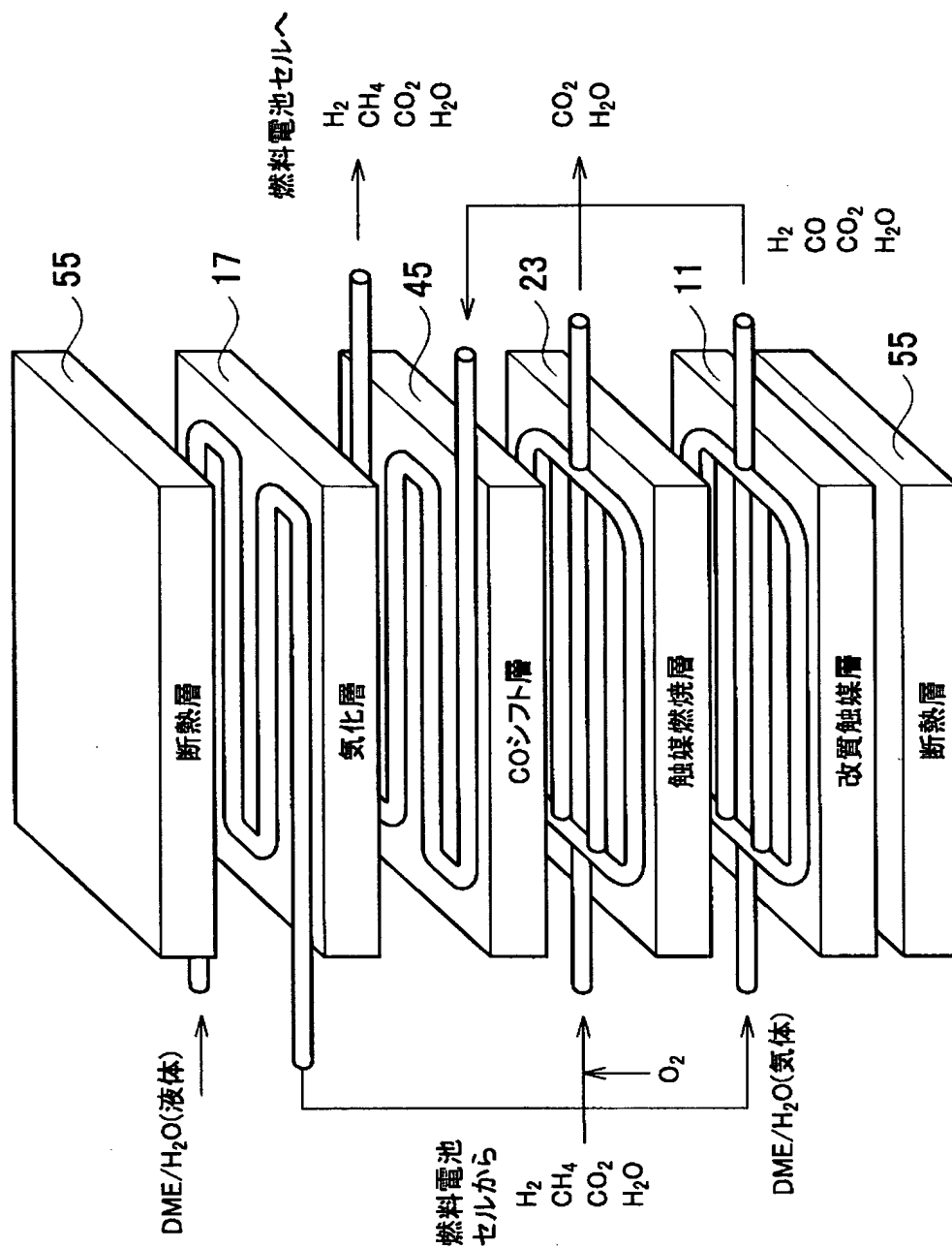


【図 3】





【図 4】



【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 燃料の飽和蒸気圧を利用して燃料の供給を行う燃料電池システムを提供する。

【解決手段】 燃料を水素リッチガスに改質する改質器 1 1 と、改質器 1 1 から供給される水素リッチガスと酸素供給手段 2 5 から供給される酸素とによって発電を行う燃料電池本体 9 とを備えてなる燃料電池システムにおいて、燃料は飽和蒸気圧が大気圧より高圧となる燃料であって密閉容器 1 3 内に収容しており、密閉容器 1 3 内の飽和蒸気圧により燃料を改質器 1 1 へ送給する構成であり、燃料は、ジメチルエーテルと水との混合液である。また、燃料を水素リッチガスに改質する改質器 1 1 と、改質器 1 1 から供給される水素リッチガスと酸素供給手段から供給される酸素とによって発電を行う燃料電池本体 9 とを備えてなる燃料電池システムにおいて、燃料は密閉容器 1 3 内に収容しており、密閉容器 1 3 内へ供給された加圧ガスの圧力により燃料を改質器 1 1 へ送給する構成である。

【選択図】 図 1

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号 [000003078]

1. 変更年月日	2001年 7月 2日
[変更理由]	住所変更
住 所	東京都港区芝浦一丁目1番1号
氏 名	株式会社東芝